

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
る事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office.

出願年月日 2000年 9月29日  
Date of Application:

出願番号 特願2000-298902  
Application Number:  
ST. 10/C] [JP2000-298902]

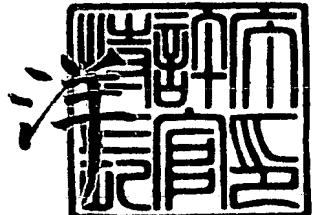
願人 ソニー株式会社  
Applicant(s):

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

2004年10月 1日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



【書類名】 特許願

【整理番号】 00008056

【提出日】 平成12年 9月29日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

C01B 31/00

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社  
内

【氏名】 山浦 潔

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社  
内

【氏名】 今里 峰久

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社  
内

【氏名】 紀平 徹

【特許出願人】

【識別番号】 000002185

【氏名又は名称】 ソニー株式会社

【代表者】 出井 伸之

【代理人】

【識別番号】 100078031

【氏名又は名称】 大石 皓一

【選任した代理人】

【識別番号】 100099715

【氏名又は名称】 吉田 聰

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100115738

【氏名又は名称】 鷺頭 光宏

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 074148

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9908458

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電気化学デバイス及びその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 表面の少なくとも一部に触媒が形成された炭素質材料からなるガス拡散電極と、前記ガス拡散電極の一方の面に接して設けられた電解質膜とを備え、前記炭素質材料のうち前記電解質膜と接する部分に形成されている触媒の量が、前記電解質膜側において、前記電解質膜側とは反対側よりも少ないことを特徴とする電気化学デバイス。

【請求項 2】 前記電気化学デバイスが、燃料電池であることを特徴とする請求項 1 に記載の電気化学デバイス。

【請求項 3】 前記電気化学デバイスが、空気電池であることを特徴とする請求項 1 に記載の電気化学デバイス。

【請求項 4】 前記炭素質材料が、複数の繊維状カーボンの集合体からなることを特徴とする請求項 1 に記載の電気化学デバイス。

【請求項 5】 前記繊維状カーボンが、少なくとも針状黒鉛を含むことを特徴とする請求項 4 に記載の電気化学デバイス。

【請求項 6】 前記繊維状カーボンが、少なくともカーボンナノチューブを含むことを特徴とする請求項 4 に記載の電気化学デバイス。

【請求項 7】 前記触媒が、白金、白金合金、パラジウム、マグネシウム、チタン、マンガン、ランタン、バナジウム、ジルコニウム、ニッケルーランタン合金、チタン-鉄合金、イリジウム、ロジウム及び金からなる群より選ばれた 1 の材料からなることを特徴とする請求項 1 に記載の電気化学デバイス。

【請求項 8】 炭素質材料からなるシートを成形するシート成形工程と、前記シートの一方の面から気相成膜法によって触媒層を形成する触媒形成工程と、前記シートの他方の面に電解質膜を貼設する貼設工程とを備える電気化学デバイスの製造方法。

【請求項 9】 前記炭素質材料が、繊維状カーボンからなることを特徴とする請求項 8 に記載の電気化学デバイスの製造方法。

【請求項 10】 前記繊維状カーボンが、少なくとも針状黒鉛を含むことを

特徴とする請求項 9 に記載の電気化学デバイスの製造方法。

【請求項 1 1】 前記纖維状カーボンが、少なくともカーボンナノチューブを含むことを特徴とする請求項 9 に記載の電気化学デバイスの製造方法。

【請求項 1 2】 前記シート成形工程が、前記纖維状カーボンを分散液中に導入し、これを濾過するものであることを特徴とする請求項 9 に記載の電気化学デバイスの製造方法。

【請求項 1 3】 前記気相成膜法が、スパッタリング法であることを特徴とする請求項 8 に記載の電気化学デバイスの製造方法。

【請求項 1 4】 前記気相成膜法が、真空蒸着法であることを特徴とする請求項 8 に記載の電気化学デバイスの製造方法。

【請求項 1 5】 前記気相成膜法が、パルスレーザデポジション法であることを特徴とする請求項 8 に記載の電気化学デバイスの製造方法。

【請求項 1 6】 前記触媒形成工程の後、前記シートの前記一方の面に炭素質材料を形成する工程をさらに備えることを特徴とする請求項 8 に記載の電気化学デバイスの製造方法。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

##### 【発明の属する技術分野】

本発明は、電気化学デバイス及びその製造方法に関し、特に、触媒の利用効率が高い電気化学デバイス及びその製造方法に関する。

##### 【0002】

##### 【従来の技術】

産業革命以後、自動車などのエネルギー源としてはもちろん、電力製造などのエネルギー源として、ガソリン、軽油などの化石燃料が広く用いられてきた。この化石燃料の利用によって、人類は飛躍的な生活水準の向上や産業の発展などの利益を享受することができたが、その反面、地球は深刻な環境破壊の脅威にさらされ、さらに、化石燃料の枯渇の虞が生じてその長期的な安定供給に疑問が投げかけられる事態となりつつある。

##### 【0003】

そこで、水素は、水に含まれ、地球上に無尽蔵に存在している上、物質量あたりに含まれる化学エネルギー量が大きく、また、エネルギー源として使用するときに、有害物質や地球温暖化ガスなどを放出しないなどの理由から、化石燃料に代わるクリーンで、かつ、無尽蔵なエネルギー源として、近年、大きな注目を集めようになっている。

#### 【0004】

ことに、近年は、水素エネルギーから電気エネルギーを取り出すことができる電気エネルギー発生装置の研究開発が盛んにおこなわれており、大規模発電から、オンサイトな自家発電、さらには、自動車用電源としての応用が期待されている。

#### 【0005】

水素エネルギーから電気エネルギーを取り出すための電気エネルギー発生装置、すなわち燃料電池は、水素が供給される水素電極と、酸素が供給される酸素電極とを有している。水素電極に供給された水素は、触媒の作用によって、プロトン（陽子）と電子に解離され、電子は水素電極の集電体で集められ、他方、プロトンは酸素電極に運ばれる。水素電極において集められた電子は、負荷を経由して、酸素電極に運ばれる。一方、酸素電極に供給された酸素は、触媒の作用により、水素電極から運ばれたプロトンおよび電子と結合して、水を生成する。このようにして、水素電極と酸素電極との間に起電力が生じ、負荷に電流が流れる。

#### 【0006】

##### 【発明が解決しようとする課題】

このように、水素エネルギーから電気エネルギーを取り出す燃料電池においては、水素電極と酸素電極との間に起電力を生じさせるためには、水素電極においては水素をプロトン（陽子）と電子に解離することが必要であり、一方、酸素電極においてはプロトン、電子及び酸素を反応させて水を生成することが必要である。したがって、水素電極においては、水素のプロトンと電子との解離を促進する触媒層が必要とされ、酸素電極においては、プロトン、電子及び酸素の結合を促進する触媒層が必要とされる。

#### 【0007】

かかる触媒層は、水素電極側においては水素と接触することにより、酸素電極側においては酸素と接触することにより、上述した作用をもたらすものであるから、触媒層が効果的に作用するためには、触媒層に含まれる触媒と、水素乃至は酸素とが効率よく接触する必要がある。すなわち、触媒層に含まれる触媒と水素乃至は酸素との接触効率が悪いと、使用する触媒の量に比して十分な触媒作用を得ることができず、このため、エネルギー生成効率が悪化するという問題が生じてしまう。

#### 【0008】

また、このような問題は、燃料電池用の水素電極及び酸素電極のみならず、空気電池等の他の電気化学デバイスに用いられるガス拡散電極においても同様に生じる問題である。

#### 【0009】

したがって、本発明の目的は、触媒と原料ガスとが効果的に接触することができ、これによってエネルギーの効率が高められた電気化学デバイス及びその製造方法を提供することである。

#### 【0010】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明のかかる目的は、表面の少なくとも一部に触媒が形成された炭素質材料からなるガス拡散電極と、前記ガス拡散電極の一方の面に接して設けられた電解質膜とを備え、前記炭素質材料のうち前記電解質膜と接する部分に形成されている触媒の量が、前記電解質膜側において、前記電解質膜側とは反対側よりも少ないことを特徴とする電気化学デバイスによって達成される。

#### 【0011】

本発明によれば、炭素質材料のうち電解質膜と接する部分では、電解質膜側の方が電解質膜側とは反対側よりも触媒の量が少ないので、触媒が電解質膜によって覆われることが少なく、触媒と原料ガスとを効果的に接触させることができる。これにより、エネルギーの効率が高められた電気化学デバイスを提供することができる。

#### 【0012】

本発明の好ましい実施態様においては、前記電気化学デバイスが、燃料電池である。

#### 【0013】

本発明の別の好ましい実施態様においては、前記電気化学デバイスが、空気電池である。

#### 【0014】

本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記炭素質材料が、複数の纖維状カーボンの集合体からなる。

#### 【0015】

本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記纖維状カーボンが、少なくとも針状黒鉛を含む。

#### 【0016】

本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記纖維状カーボンが、少なくともカーボンナノチューブを含む。

#### 【0017】

本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記触媒が、白金、白金合金、パラジウム、マグネシウム、チタン、マンガン、ランタン、バナジウム、ジルコニウム、ニッケルーランタン合金、チタン-鉄合金、イリジウム、ロジウム及び金からなる群より選ばれた1の材料からなる。

#### 【0018】

本発明の前記目的はまた、炭素質材料からなるシートを成形するシート成形工程と、前記シートの一方の面から気相成膜法によって触媒層を形成する触媒形成工程と、前記シートの他方の面に電解質膜を貼設する貼設工程とを備える電気化学デバイスの製造方法によって達成される。

#### 【0019】

本発明によれば、シートの一方の面から気相成膜法によって触媒層を形成するとともに、シートの他方の面に電解質膜を貼設していることから、シートのうち電解質膜と接する部分では、電解質膜側の方が電解質膜側とは反対側よりも触媒の量が少なくなり、電解質膜によって覆われる触媒を低減することができる。こ

れにより、触媒と原料ガスとを効果的に接触させることができ、エネルギーの効率が高められた電気化学デバイスを製造することが可能となる。

#### 【0020】

本発明の好ましい実施態様においては、前記炭素質材料が、纖維状カーボンからなる。

#### 【0021】

本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記纖維状カーボンが、少なくとも針状黒鉛を含む。

#### 【0022】

本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記纖維状カーボンが、少なくともカーボンナノチューブを含む。

#### 【0023】

本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記シート成形工程が、前記纖維状カーボンを分散液中に導入し、これを濾過するものである。

#### 【0024】

本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記気相成膜法が、スパッタリング法である。

#### 【0025】

本発明の別の好ましい実施態様においては、前記気相成膜法が、真空蒸着法である。

#### 【0026】

本発明の別の好ましい実施態様においては、前記気相成膜法が、パルスレーザデポジション法である。

#### 【0027】

本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記触媒形成工程の後、前記シートの前記一方の面に炭素質材料を形成する工程をさらに備える。

#### 【0028】

本発明のさらに好ましい実施態様によれば、シートの機械的強度を高めることが可能となる。

**【0029】****【発明の実施の形態】**

以下、添付図面に基づいて、本発明の好ましい実施態様につき、詳細に説明を加える。

**【0030】**

図1は、本発明の好ましい実施態様にかかる燃料電池の概略的構成を示す図面である。

**【0031】**

図1に示されるように、本実施態様にかかる燃料電池は、酸素電極1と、燃料電極である水素電極2と、酸素電極1及び水素電極2に挟持された電解質膜であるプロトン伝導体部3とを備えている。酸素電極1は、纖維状カーボン集合体からなる電極基体4とその表面に形成された触媒層5によって構成され、同様に、水素電極2は、纖維状カーボン集合体からなる電極基体6とその表面に形成された触媒層7によって構成されている。触媒の種類としては、白金、白金合金、パラジウム、マグネシウム、チタン、マンガン、ランタン、バナジウム、ジルコニア、ニッケルーランタン合金、チタン-鉄合金、イリジウム、ロジウム、金などがあるが、好ましいのは、白金及び白金合金である。

**【0032】**

また、図1に示されるように、酸素電極1の電極基体4からは正極リード8が導出され、水素電極2の電極基体6からは負極リード9が導出されており、これら正極リード8及び負極リード9は、図示しない負荷に接続される。酸素電極1側においては、空気10が導入口11から流路12に供給され、排出口13から排出されるように構成されており、水素電極2側においては、水素供給源14より供給される水素15が、導入口16から流路17に供給され、排出口18から排出されるように構成されている。

**【0033】**

導入口16から流路17に供給された水素15は、纖維状カーボン集合体からなる電極基体6を介してその表面に形成された触媒層7に達し、触媒作用によってプロトンと電子とに解離される。このうち電子は、電極基体6を経由して負極

リード9へ移動し、図示しない負荷へ供給され、プロトンは、プロトン伝導体部3を経由して酸素電極1側へ移動する。一方、導入口11から流路12に供給された酸素10は、繊維状カーボン集合体からなる電極基体4を介してその表面に形成された触媒層5に達し、触媒作用によって、プロトン伝導体部3より供給されるプロトン及び正極リード8を介して負荷より供給される電子と結合して水となる。このようにして、所望の起電力が取り出される。

#### 【0034】

ここで、プロトン伝導体部3は、水素15の透過を防止するとともにプロトンを透過させる膜であり、その材料は特に限定されないが、炭素を主成分とする炭素質材料を母体とし、これにプロトン解離性の基が導入されてなる材料を用いることが好ましい。尚、「プロトン解離性の基」とは、「プロトンが電離により離脱し得る官能基」であることを意味する。

#### 【0035】

また、プロトン伝導体部3の母体となる炭素質材料には、炭素を主成分とするものであれば、任意の材料を使用することができるが、プロトン解離性の基を導入した後に、イオン導電性が電子伝導性よりも大であることが必要である。ここで、母体となる炭素質材料としては、具体的には、炭素原子の集合体である炭素クラスターや、カーボンチューブを含む炭素質材料を挙げることができる。

#### 【0036】

炭素クラスターには種々のものがあり、フラーレンや、フラーレン構造の少なくとも一部に開放端を持つもの、ダイヤモンド構造を持つもの等が好適である。もちろんこれらに限らず、プロトン解離性の基を導入した後にイオン導電性が電子伝導性よりも大であるものであれば、いかなるものであっても良い。

#### 【0037】

プロトン伝導体部3の母体となる炭素質材料としては、フラーレンを選択することが最も好ましく、これにプロトン解離性の基、例えば-OH基、-OSO<sub>3</sub>H基、-COOH基、-SO<sub>3</sub>H基、-OPO(OH)<sub>2</sub>基が導入された材料をプロトン伝導体部3の材料として用いることが好ましい。

#### 【0038】

また、プロトン伝導体部3の材料として上記炭素を主成分とする炭素質材料を母体とする材料以外の材料、例えば、パーフルオロスルホン酸樹脂等を用いても良い。

#### 【0039】

また、水素供給源14としては、水素ボンベ、水素吸蔵合金若しくは炭素質水素吸蔵材料を用いることができ、炭素質水素吸蔵材料としては、フラーレン、カーボンナノファイバー、カーボンナノチューブ、炭素スス、ナノカプセル、バッキーオニオン、カーボンファイバー等が挙げられる。

#### 【0040】

図2は、プロトン伝導体部3と酸素電極1若しくは水素電極2との界面を拡大して示す略断面図である。

#### 【0041】

図2に示されるように、酸素電極1若しくは水素電極2を構成する電極基体4、6は、複数の繊維状カーボン30の集合によって構成され、その表面には触媒31が担持されている。また、繊維状カーボン30のうちプロトン伝導体部3に接しているものについては、その一部がプロトン伝導体部3の内部に埋設しており、当該埋設している部分においては、触媒31の形成量が露出している部分よりも少なくなっている。尚、当該埋設している部分においては、触媒31が形成されていないことが好ましいが、現実には、埋設している部分において触媒31を完全に排除することは困難であるため、図2に示されるように、埋設している部分において触媒31の量が低減されればよい。

#### 【0042】

このように、本実施態様による燃料電池においては、酸素電極1若しくは水素電極2が複数の繊維状カーボン30の集合によって構成され、その表面に触媒31が担持されている一方、繊維状カーボン30のうちプロトン伝導体部3によって覆われている部分については、当該覆われている部分において触媒31の形成量が露出している部分よりも少ないとから、触媒31の利用効率が非常に高い。すなわち、繊維状カーボン30のうち、プロトン伝導体部3によって覆われている部分については、当該覆われている部分は酸素10若しくは水素15と接す

ることがないため、当該部分に触媒 31 を形成しても触媒としての作用を果たさないところ、本実施態様による燃料電池においては、このような部分について触媒 31 の形成量が低減されていることから、触媒 31 の利用効率が非常に高い。このため、燃料電池のエネルギー生成効率を高めることが可能となる。

#### 【0043】

次に、本実施態様にかかる燃料電池の製造方法について説明する。

#### 【0044】

まず、酸素電極 1 及び水素電極 2 を作製すべく、所定の面積を有するフィルタと、繊維状カーボンが混入された分散液とを準備する。繊維状カーボンとしては、カーボンナノチューブや針状黒鉛が挙げられるが、繊維状カーボンとしてカーボンナノチューブを選択した場合、これらは非常に微細な繊維状物質であるため、互いに絡み合いやすい反面、密度が高いためガス透過性が低いという難点がある。一方、繊維状カーボンとして針状黒鉛を選択した場合、針状黒鉛はカーボンナノチューブと比べると太い繊維状（針状）物質であるため、ガス透過性は十分に高いが、互いに絡み合いにくいという難点がある。したがって、上記分散液に混入すべき繊維状カーボンとしては、カーボンナノチューブと針状黒鉛とを所定の割合で混合することが好ましい。

#### 【0045】

また、カーボンナノチューブとは、直径が約数ナノメートル以下、代表的には 1. 2 ~ 1. 7 ナノメートル程度のチューブ状炭素質であり、単層のチューブからなるシングルウォールカーボンナノチューブ（SWCNT）と、2 つ以上の層が同心円的に重なっているマルチウォールカーボンナノチューブ（MWCNT）の 2 種類が知られている。その長さは、特に限定されないが、代表的には、数マイクロメートル程度である。また、カーボンナノファイバーとは、カーボンナノチューブのうちその直径が特に大きいものを言い、代表的には、その直径は数ナノメートル以上、巨大なものでは 1 マイクロメートルに達する。以下の説明において、「カーボンナノチューブ」とは、カーボンナノファイバーを含むものとする。

#### 【0046】

尚、カーボンナノチューブは、グラファイトのロッドを用いたアーク放電法によって生成することができる。

#### 【0047】

また、フィルタとしては、分散液を濾過し、これに混入されたカーボンナノチューブ及び針状黒鉛を採集可能であればよく、ガラス繊維からなるフィルタを用いることが好ましい。また、分散液としては、水、メタノール・エタノール等のアルコール類及びトルエンの混合液に、微量の水酸化ナトリウムを添加した混合液を用いればよい。ここで、水酸化ナトリウムは、カーボンナノチューブ及び針状黒鉛の凝集を防止する役割を果たす。

#### 【0048】

次に、上記フィルタを用いて、分散液を濾過する。これにより、フィルタの表面にはカーボンナノチューブ及び針状黒鉛の混合体が堆積する。このとき、カーボンナノチューブ及び針状黒鉛はいずれも繊維質であることから、フィルタの表面において多数のカーボンナノチューブ及び針状黒鉛同士が互いに絡み合い、一体化してシート状となる。このとき、後の工程にて行う触媒31の形成を効果的に行うためには、シート自体の機械的強度が不足しない限りにおいて、当該シートをできるだけ薄く形成することが望ましい。

#### 【0049】

次に、フィルタの表面に形成されたシート状のカーボンナノチューブ及び針状黒鉛の集合体をフィルタの表面から剥がし、これをスパッタリング用のチャンバー内に導入する。

#### 【0050】

次に、スパッタリング用のチャンバー内において、シート状のカーボンナノチューブ集合体に対し、スパッタリング法により触媒31を成膜する。触媒の種類としては、白金、白金合金、パラジウム、マグネシウム、チタン、マンガン、ランタン、バナジウム、ジルコニウム、ニッケルーランタン合金、チタン-鉄合金、イリジウム、ロジウム、金などがあるが、好ましいのは、白金及び白金合金である。このとき、スパッタリング法によれば、シート状のカーボンナノチューブ集合体のうち、ターゲットに対して露出している部分にのみ触媒31が形成され

る。すなわち、陰となっている部分には実質的に触媒31は形成されない。ここでは、スパッタリングにおいてターゲットに向いている面をシートの「表面」と定義し、逆の面を「裏面」と定義する。

#### 【0051】

次に、かかるシートに、プロトン伝導体部3に用いられる材料と同じプロトン伝導材料を塗布する。例えば、プロトン伝導体部3の材料として、フーレンにプロトン解離性の基である-OH基が導入された材料（フーレノール）を用いた場合、かかるシートにフーレノールを塗布する。

#### 【0052】

これにより、酸素電極1及び水素電極2が完成する。

#### 【0053】

次に、このようにして完成した酸素電極1及び水素電極2の裏面にてプロトン伝導体部3を挟持し、酸素電極1側には、空気10の導入口11、流路12及び排出口13を設け、水素電極2側には、水素15の導入口16、流路17及び排出口18を設けることによって、本実施態様による燃料電池が完成する。

#### 【0054】

本実施態様にかかる方法によれば、シートの表面から触媒31をスパッタリングしているため、シートの裏面には実質的に触媒31が形成されない。このため、かかるシートを酸素電極1及び水素電極2とし、その裏面にてプロトン伝導体部3を挟持して燃料電池を構成すれば、酸素電極1及び水素電極2を構成する繊維状カーボン30のうち、プロトン伝導体部3によって覆われる部分における触媒31の量を低減することが可能となる。これにより、触媒31の利用効率が非常に高くなるため、触媒31の使用量に対して、燃料電池のエネルギー生成効率を高めることが可能となる。

#### 【0055】

次に、本発明の好ましいさらに他の実施態様について説明する。

#### 【0056】

図3は、本発明の好ましいさらに他の実施態様にかかる空気電池の概略的構成を示す図面である。

## 【0057】

図3に示されるように、本実施態様にかかる空気電池（空気一亜鉛電池）は、空気極21と、負極22と、空気極21及び負極22に挟持された電解質23とを備えている。空気極21は、繊維状カーボンの集合体からなる電極基体とその表面に形成された触媒層によって構成されており、負極22は、厚さ100マイクロメートルの亜鉛板によって構成されている。また、空気極21の電極基体からは正極リード24が導出され、負極22からは負極リード25が導出されており、これら正極リード24及び負極リード25は、図示しない負荷に接続される。空気極21、負極22及びこれらに挟持された電解質23は、厚さ3ミリメートルのテフロン板26a及び26bによって挟持されており、これらテフロン板26a及び26bは、ボルト27a及び27bによって固定されている。さらに、テフロン板26bには、空気極21に空気を供給するための複数の空気孔28が形成されている。空気孔28の直径は、1.5ミリメートルである。

## 【0058】

このような構成からなる空気電池は、次の方法で作製することができる。

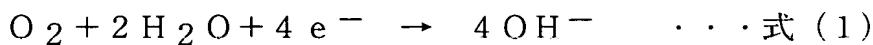
## 【0059】

まず、上述各実施態様による方法により、繊維状カーボンの集合体の表面に触媒層を形成することによって空気極21を作製する。この空気極21の裏面に、電解質23として塩化亜鉛の水溶液をゲル化させたものを厚み約50マイクロメートルに塗布し、さらに、負極22を接合する。そして、この接合体の両面をテフロン板26a及び26bでしっかりと挟み込んで、ボルト27a及び27bにより固定する。これにより空気電池が完成する。

## 【0060】

このようにして製造された空気電池は、空気極21においては式（1）に示される反応が進行し、負極22においては式（2）に示される反応が進行する。

## 【0061】



したがって、全体としては式（3）に示される反応が進行することになり、所

定の起電力を得ることができる。

【0062】



本実施態様にかかる空気電池においても、空気極21を構成する繊維状カーボンのうち、その表面が電解質23によって覆われている部分については、触媒の形成量が露出している部分よりも少ないとことから、触媒の利用効率が非常に高くなる。このため、本実施態様にかかる空気電池のエネルギー効率を高めることが可能となる。

【0063】

本発明は、以上の実施態様に限定されることなく、特許請求の範囲に記載された発明の範囲内で種々の変更が可能であり、それらも本発明の範囲内に包含されるものであることはいうまでもない。

【0064】

例えば、上記実施態様においては、シート状の繊維状カーボン集合体の表面に触媒を形成する方法としてスパッタリング法を用いているが、繊維状カーボンの表面に触媒を形成する方法としてはスパッタリング法に限定されず、他の方法、例えば、真空蒸着法やパルスレーザデポジション法等の他の気相成膜法を用いても良い。

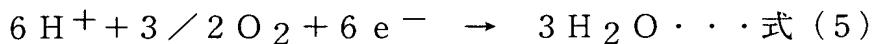
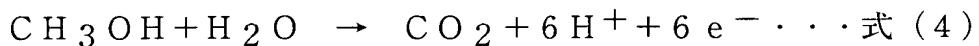
【0065】

また、上記実施態様においては、触媒を形成した繊維状カーボン集合体からなるシートをそのまま酸素電極1及び水素電極2としているが、当該シートの表面にカーボンシートを貼設し、これによって酸素電極1及び水素電極2を構成しても構わない。繊維状カーボン集合体からなるシートは、上述の通り、薄く形成することが好ましいため、その物理的強度が不足するおそれがあるが、シートの表面にカーボンシートを貼設すれば、強度を高めることが可能となる。さらに、繊維状カーボン集合体からなるシートの表面に、触媒31をスパッタリングした後、繊維状カーボン30が含まれた分散液を用いた濾過を引き続き行うことにより、当該シートの表面にさらに繊維状カーボン集合体を集積させて酸素電極1及び水素電極2としてもよい。

## 【0066】

さらに、上記実施態様においては、作製された燃料電池の燃料ガスとして、水素ガスを使用しているが、燃料ガスとしては水素ガスに限定されず、他の燃料ガス、例えばメタノールを気化させたガスを用いても良い。この場合、メタノールを気化させたガスが供給される負極においては、式（4）に示される反応が進行し、空気が供給される酸素電極1（正極）においては式（5）に示される反応が進行する。

## 【0067】



したがって、全体としては式（6）に示される反応が進行することになり、所定の起電力を得ることができる。

## 【0068】



但し、燃料ガスとしてメタノールを気化させたガスを用いた場合、水の他に二酸化炭素が生成される。

## 【0069】

## 【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、ガス拡散電極が複数の纖維状カーボンの集合によって構成され、纖維状カーボンのうち電解質膜によって覆われている部分については、触媒の形成量が露出している部分よりも少ないとから、触媒の利用効率が非常に高く、これにより、電気化学デバイスのエネルギー効率を高めることが可能となる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【図1】

図1は、本発明の好ましい実施態様にかかる燃料電池の概略的構成を示す図面である。

## 【図2】

図2は、プロトン伝導体部3と酸素電極1若しくは水素電極2との界面を拡大

して示す略断面図である。

【図3】

図3は、本発明の好ましいさらに他の実施態様にかかる空気電池の概略的構成を示す図面である。

【符号の説明】

- 1 酸素電極
- 2 水素電極
- 3 プロトン伝導体部
- 4, 6 電極基体
- 5, 7 触媒層
- 8 正極リード
- 9 負極リード
- 10 空気
- 11 導入口
- 12 流路
- 13 排出口
- 14 水素供給源
- 15 水素
- 16 導入口
- 17 流路
- 18 排出口
- 21 空気極
- 22 負極
- 23 電解質
- 24 正極リード
- 25 負極リード
- 26 a, 26 b テフロン板
- 27 a, 27 b ボルト
- 28 空気孔

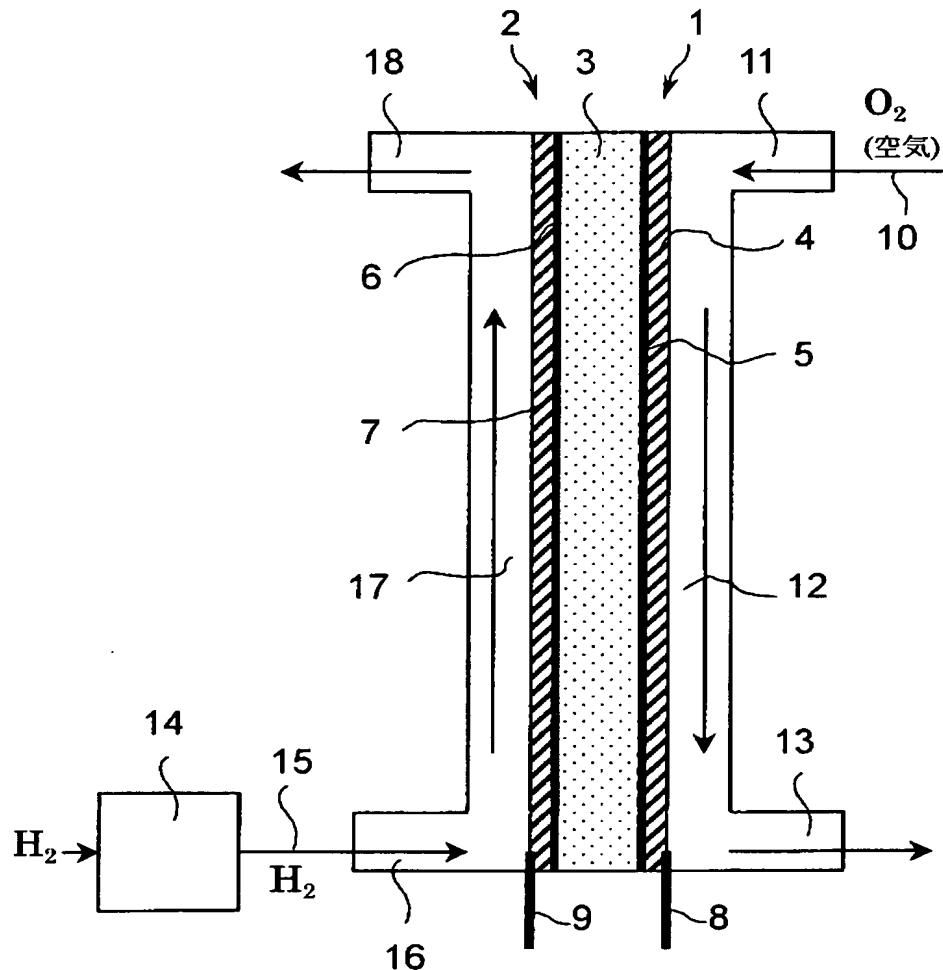
30 繊維状カーボン

31 触媒

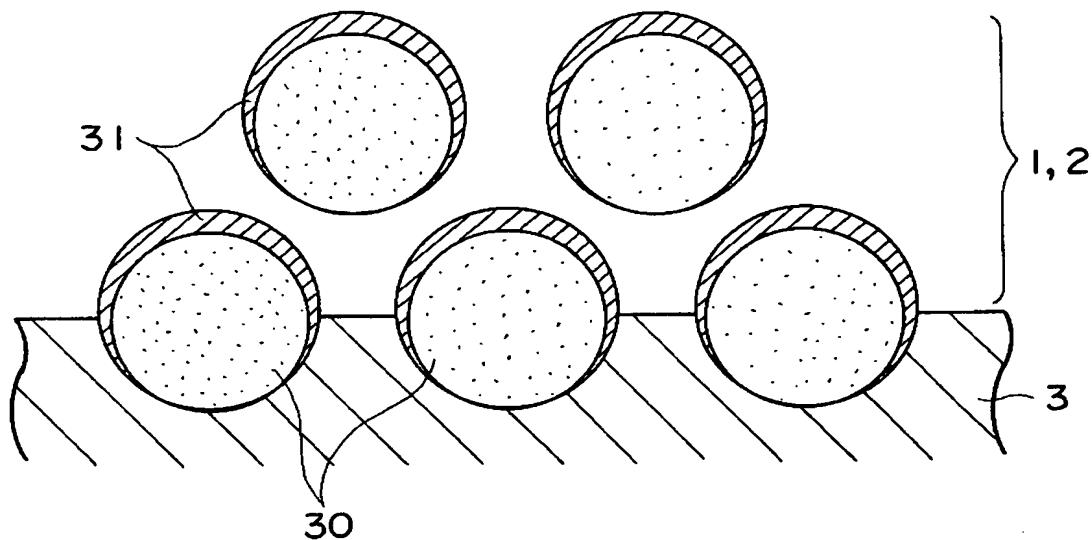
【書類名】

図面

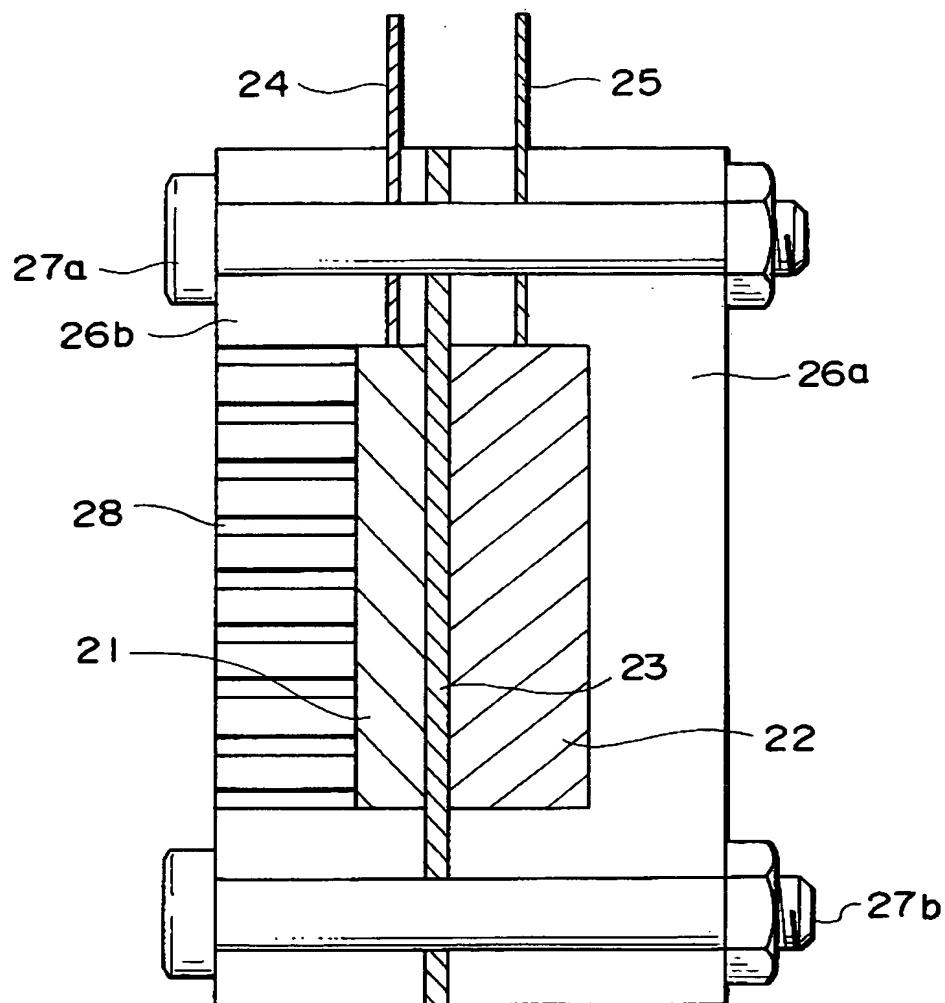
【図1】



【図2】



【図3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 触媒の利用効率が高い電気化学デバイスを提供する。

【解決手段】 本発明による電気化学デバイスは、表面の少なくとも一部に触媒が形成された炭素質材料からなるガス拡散電極と、ガス拡散電極の一方の面に接して設けられた電解質膜とを備え、炭素質材料のうち電解質膜と接する部分に形成されている触媒の量が、電解質膜側において、電解質膜側とは反対側よりも少なくなっている。このため、触媒の利用効率が非常に高くなり、電気化学デバイスのエネルギー効率を高めることが可能となる。

【選択図】 図 2

特願 2000-298902

出願人履歴情報

識別番号 [000002185]

1. 変更年月日 1990年 8月30日

[変更理由] 新規登録

住所 東京都品川区北品川6丁目7番35号  
氏名 ソニー株式会社